



TITLE:

4.強誘電体単結晶のCCD顕微鏡による分域観察(上智大学大学院理工学研究科物理学専攻,修士論文題目・アブストラクト(1989年度))

AUTHOR(S):

加藤, 浩一郎

---

CITATION:

加藤, 浩一郎. 4.強誘電体単結晶のCCD顕微鏡による分域観察(上智大学大学院理工学研究科物理学専攻,修士論文題目・アブストラクト(1989年度)). 物性研究 1990, 54(6): 800-802

ISSUE DATE:

1990-09-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/94153>

RIGHT:

- 1) T.Hirayama, A.Matsumoto, S.Otani, T.Takayanagi, K.Wakiya and H.Suzuki  
J.Phys.Soc.Jpn.
- 2) B.Peat, J.R.A.Underwood and K.T.Dolder, J.Phys.B, 22, 1679(1980)
- 3) A.Mular et.al, J.Phys.B, 17, 1427(1984)
- 4) D.R.Hertring et.al, J.Appl.Phys, 53, 5427(1982)
- 5) D.W.Hughes and R.K.Feeney, Phys.Rev.A, 23, 2241(1981)
- 6) A.Muler and R.Prodl, Phys.Rev.Lett, 44, 29(1980)

#### 4. 強誘電体単結晶の CCD 顕微鏡による分域観察

加 藤 浩一郎

##### 《序論》

従来、強誘電体の分域の直接観察には、光学顕微鏡あるいは電子顕微鏡が使用されてきた。しかしながら、通常の光学顕微鏡では、倍率が1000倍程度が限界と言われ、その倍率では像が暗く、また収差除去用液体のために、サンプルの温度を変化させたり、電界をかけることはできない。また、電子顕微鏡も、操作の複雑さに加えて、電界等を印加することは困難である。このような問題点を解決し、強誘電体の分域のダイナミカルな挙動をとらえるために、本研究では、低倍率の対物レンズ( $\times 20$ )と高性能CCDを組み合わせることにより、モニター上の倍率が約1300倍で、非常に明視野の顕微鏡を構成した(fig. 1)。この顕微鏡を用いることにより、強誘電体等の結晶を薄く(100 $\mu\text{m}$ 程度)し、さらに光学研磨することにより、容易にその分域構造を観察することができる。さらに、サンプルに電極を取り付けることにより、電界の印加も容易であり、また、サンプルと対物レンズ間の距離が十分とれるので、昇温用サンプルホルダーを取り付けることも可能である。さらに、CCDをVTRに接続することにより、観察結果をそのままビデオに録画することができる。

本研究では、これらの装置を使用して、複合ペロブスカイト酸化物のひとつである亜鉛ニオブ酸鉛とチタン酸鉛の固溶系単結晶について、温度を変化したときと、電界を印加した時の、それぞれの分域の動的な挙動をはじめて克明に観察し、ビデオに収めることができた。

我々は、ランダムなイオン配列を持つ複合ペロブスカイト酸化物が、なぜ高い誘電率、また誘電緩和現象を示すのかということについて研究を行っており、今回の分域観察はその一環である。

##### 《実験》

今回の観察に用いた亜鉛ニオブ酸鉛とチタン酸鉛の固溶系単結晶の作製方法としては、フラックス法といわれる融剤を用いる方法を用いた<sup>1)2)</sup>。この融剤には酸化鉛(PbO)を用いて、まず白金るつばに原料粉とPbOを1:1の比に入れ、密閉する。1200°Cで溶解させた後、毎時1°Cから5°Cの冷却速度で850°Cまでゆっくりと降下させ、単結晶を成長させる。得られる単結晶は数センチにおよぶものもあり、形は不定形でバルク状である。fig. 2にこの単結晶作製のフローチャートを示した。この固溶系単結晶は、 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ を10mol%だけ $\text{PbTiO}_3$ に置換した組成物で、室温において菱面体晶と正方晶の相境界(モルフォトロピック相境界)があり、この近傍の組成物は優れた圧電性を示し、また電気機械結合係数も非常に大きい。この他にも、この固溶系の単結晶は、同じように菱面体晶-正方晶相境界において大きな圧電性を示すPZT系セラミックス(単結晶が得られない)に比べると、フラックス法を用いることにより大きな単結晶を容易に得ることができるという特長がある。 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ は、その誘電率の温度に対する変化から散漫な相転移を示すが<sup>3)4)</sup>、 $\text{PbTiO}_3$ を加えるに従い、シャープな相転移を示すようになることがわかっている<sup>5)</sup>。この固溶系の相図はfig. 3に示した<sup>2)</sup>。

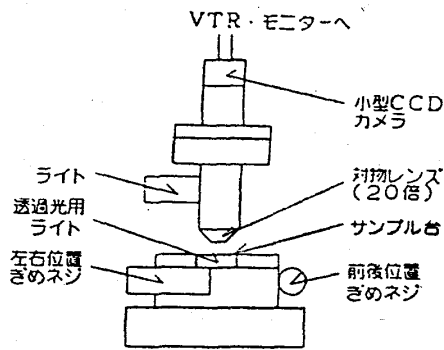


fig. 1 CCD顕微鏡の構成

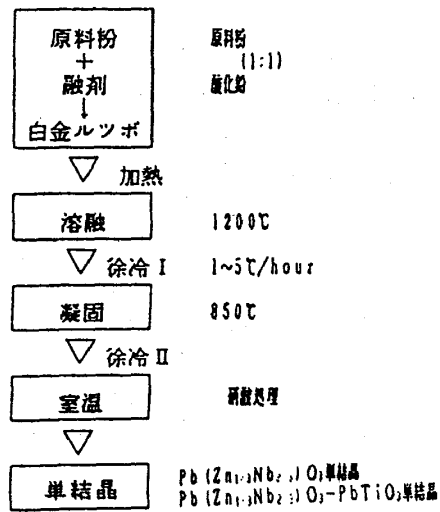


fig. 2 単結晶作製のフローチャート

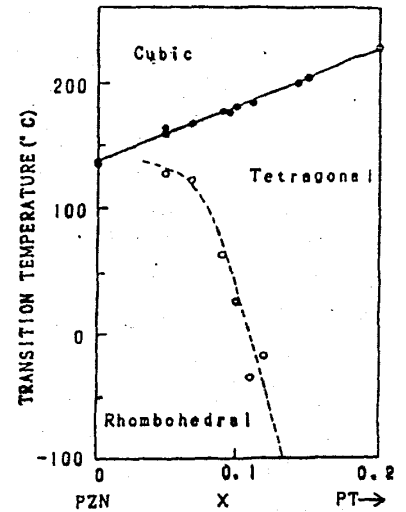


fig. 3 (1-x)PZN-xPT系の相図

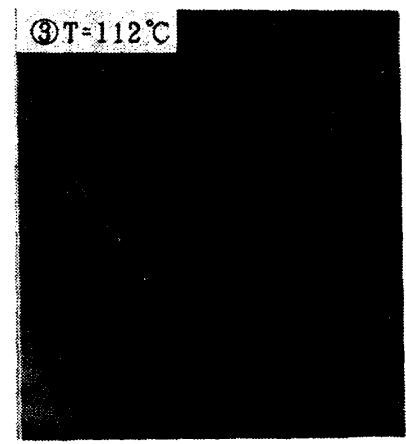
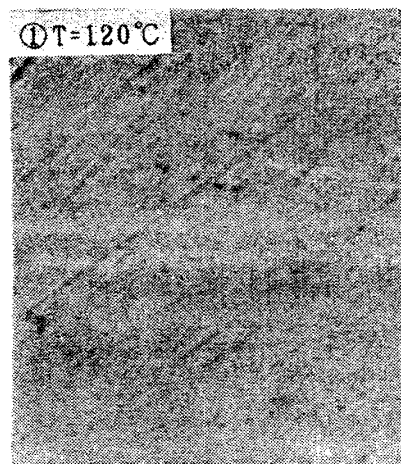
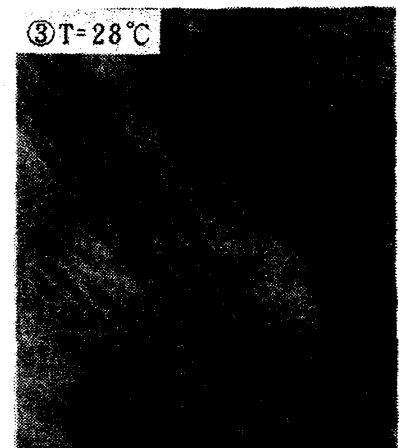
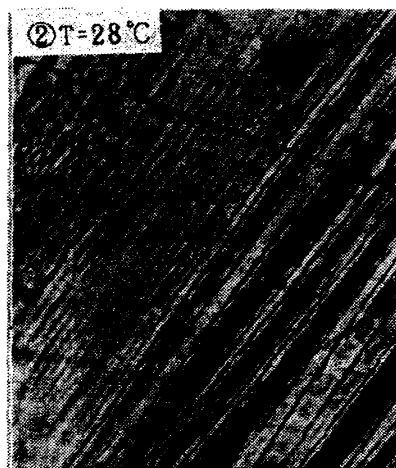
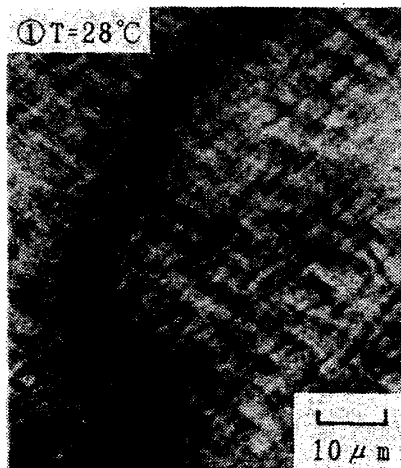


fig. 4 (1-x)PZN-xPT系の温度変化時の観察結果①x=0②x=0.07③x=0.095

### 《結果》

亜鉛ニオブ酸鉛とチタン酸鉛の固溶の割合を $(1-x)\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ として $x$ を用いて表わすことにする。本稿においては、室温付近において菱面体晶と正方晶のモルフォトロピック相境界があるものを含んだ ① $x=0$  ② $x=0.07$  ③ $x=0.095$  という割合の3種類の試料の温度変化時の観察結果を写真にして示した(fig. 4)。

ペロブスカイト型結晶構造を持つ強誘電体の多くは、キュリー温度において、強誘電相と常誘電相との間で相転移をする。亜鉛ニオブ酸鉛のように複合ペロブスカイトでランダムなイオン配列をもつものでは、イオン分布の統計的な不均一さなどのために、キュリー温度が局所において異なり、そのために相転移が広い温度領域にわたって散漫になる。そして、特に低温においては強誘電相の緩和的な誘電分散、すなわち誘電率の周波数依存性が顕著にみられる。亜鉛ニオブ酸鉛にチタン酸鉛を加えるに従い、その相転移はシャープになっていくが、今回の実験では、その分域構造も細かい紡錘形の分域から明瞭で直線的な分域へと変化するということが実際に観察された。つまり、上で述べた強誘電体の相転移の散漫さや誘電緩和性は、分域の動的な挙動と密接な関係があるということがわかった。

### 《本研究の発表》

- 1)加藤浩一郎、内野研二：第36回応用物理学関係連合講演会 4aZK9/I (1989, 春)
- 2)加藤浩一郎、鈴木加代子、内野研二：第50回応用物理学学会学術講演会発表 29pZC8/I (1989, 秋)
- 3)鈴木加代子、加藤浩一郎、内野研二：先端材料科学・技術研究会 (1989, 冬:研究奨励賞受賞)

### 《参考文献》

- 1)佐田透：上智大学大学院昭和62年度修士論文p. 31-
- 2)桑田純：東京工業大学大学院昭和56年度修士論文p. 125-
- 3)Jun Kuwata, Kenji Uchino and Shoichiro Nomura:Ferroelectrics 22 (1979) 863
- 4)野村昭一郎、内野研二：固体物理18 p71- (1982)
- 5)Shoichiro Nomura, Hideo Arima and Fumiko Kojima:Jpn. J. Appl. Phys. 12 4 (1973) 531

## 5. Studies on Atomic and Molecular Process

Byong Soo Min

This paper consists of three parts. The first is on the supersonic nozzle beam, the second is on the threshold-electron photo-ion coincidence (TEPICO) technique, third is on the electron-energy-loss spectroscopy.

### 1. Assessment of the performance of the supersonic nozzle beam.<sup>1)</sup>

In any experiment that uses a molecular beam, it is advantageous to introduce the supersonic nozzle beam because of its strong intensity, narrow velocity distribution, and, stable inner state of the beam. As the first step of the assessment of the beam quality, we measured the velocity distribution in a neon beam by the time-of-flight (TOF) method for the supersonic nozzle beam apparatus at the Institute for Laser Science, University of Electro-Communications. Figure 1 shows a diagram of the experimental setup. Figure 2 shows the measured beam intensity as a function of flight-time. We obtain the velocity distribution and the Mach-number of the beam, which characterizes the beam quality, by the technique of fitting a theoretical distribution curve to the